

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-129396

(43) 公開日 平成11年(1999) 5月18日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

識別記号

F I

B32B 15/08

B32B 15/08

U

H01M 8/02

H01M 8/02

B

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平9-296541

(22) 出願日 平成 9 年(1997) 10月29日

(71) 出願人 000100805

アイシン高丘株式会社

愛知県豊田市高丘新町天王 1 番地

(71) 出願人 000006172

三菱樹脂株式会社

東京都千代田区丸の内 2 丁目 5 番 2 号

(72) 発明者 松川 政憲

愛知県豊田市高丘新町天王 1 番地 アイシン高丘株式会社内

(72) 発明者 藤見 善裕

滋賀県長浜市三ツ矢町 5 番 8 号 三菱樹脂株式会社社長浜工場内

(74) 代理人 弁理士 近藤 久美

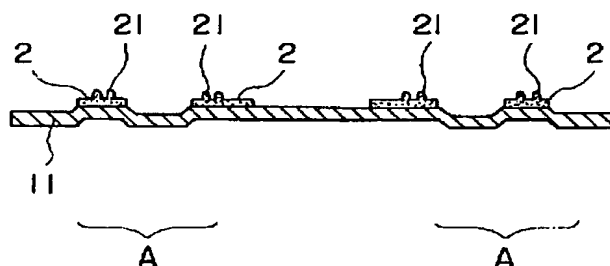
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 シリコーン樹脂-金属複合体

(57) 【要約】

【課題】 電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池のセパレータとして好適に使用でき、複雑な形状や、部品の小型化が可能なシリコーン樹脂-金属複合体を提供する。

【解決手段】 金属薄板の少なくとも片面に厚みが 0.05mm~1.0mm で硬度 (J I S K 6 3 0 1 スプリング式硬さ試験 A 形) が 40~70 の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 金属薄板の少なくとも片面に厚みが0.05mm～1.0mmで硬度(JISK6301 スプリング式硬さ試験 A形)が40～70の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体。

【請求項2】 表面に凹凸を有する金属薄板を用いてなる請求項1記載のシリコーン樹脂-金属複合体。

【請求項3】 燃料電池のセパレータに用いることを特徴とする請求項1乃至2記載のシリコーン樹脂-金属複合体。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池のセパレータとして好適に使用でき、複雑な形状や、部品の小型化が可能なシリコーン樹脂-金属複合体に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来からシリコーンゴムは、耐熱性や電気的絶縁性等の特性に優れていることから、上記クッション材やスペーサー等の各種用途に使用されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】上記のシリコーンゴム単体からなり、比較的肉厚の薄い薄膜のものを電気・電子部品等にそのまま組み入れようとすると、薄膜上にシワが生じたり、薄膜同士で密着し剥がしやすくなる等の作業性に問題があった。そこで、このような問題点を解消するためにシリコーンゴム単体と非伸縮性の金属薄板と複合一体化した積層体が知られている(例えば、特開平4-86256号、実開平2-470号)。

【0004】上記複合一体化の方法としては、通常、金属薄板の少なくとも片面にシリコーンゴムシートを載置し、加熱加圧する方法が行われているが、部分的に載置する場合、位置合せが困難であったり、さらには金属薄板の表面に凹凸があるものでは、均一に貼り合わせる事が困難という問題があった。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、上述の問題点を解消できるシリコーン樹脂-金属複合体を見出したものであり、その要旨とするところは、金属薄板の少なくとも片面に厚みが0.05mm～1.0mmで硬度(JISK6301 スプリング式硬さ試験 A形)が40～70の範囲のシリコーン樹脂層を射出成形法により形成してなるシリコーン樹脂-金属複合体にある。

## 【0006】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳しく説明する。本発明に使用される金属薄板としては、鋼板、ステンレス鋼板、メッキ処理鋼板、アルミニウム板、銅板、チタン板等が好適であるが、これらには、限定されない。金

属薄板の厚みは0.1～2.0mmの範囲のものが好適であり、表面に凹凸を有するものも使用できる。この凹凸は用途等によりその形状は異なるが、3次元的な構造であって、用途が燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータでは、燃料ガスの流路用溝等が相当する。

【0007】なお、金属薄板のシリコーン樹脂層と接する面には、密着性の点から各種プライマー層を設けることが好ましい。このプライマー層はスプレー法やディッピング法等の通常の方法により被覆すればよい。プライマー層の厚みは0.01μm～5.0μmの範囲であることが好ましく、0.01μm未満では、塗布厚さの調整が困難で有り、5.0μmを越えるものでは、密着性の改良効果が少ない。

【0008】上記金属薄板の少なくとも片面には、シリコーン樹脂層を形成するが、使用するシリコーン樹脂は液状のシリコーン樹脂であって、通常の付加型液状シリコーン樹脂で二液タイプのものが使用でき、粘度が $10^3 \sim 10^4$  ポイズ(25℃)の樹脂が好適に使用できる。粘度が $10^3$  ポイズ未満のものでは、柔らかすぎて取り扱いにくく、 $10^4$  ポイズを越えるものでは、射出成形時の流動性に劣り易い傾向にある。また、必要に応じて微粉末シリカ、ケイそう土、高熱伝導性無機フィラー等の充填剤を添加してもよい。

【0009】本発明ではシリコーン樹脂層を射出成形法により形成することに特徴があり、射出成形法としては金属薄板を金型内に保持して樹脂を射出する、いわゆるインサート成形法によればよく、金型温度として130～180℃の範囲、射出圧として150～500Kg f/cm<sup>2</sup>の範囲で気泡やバリ等が発生しない条件を適宜決めて成形すればよい。

【0010】射出成形後のシリコーン樹脂層の厚みは0.05mm～1.0mmの範囲とする必要がある。0.05mm未満では、正確な射出成形がしやすく、また弾力効果が出にくく、パッキング材としての利用性に劣り、1.0mmを超えるものでは燃料電池、特に固体高分子型燃料電池のセパレータ用としての用途では小型化しやすく、またコスト高になるという問題がある。

【0011】さらに、射出成形後のシリコーン樹脂層の硬度を40～70、好ましくは50～60の範囲とする必要がある。硬度の測定方法はJISK6301 スプリング式硬さ試験 A形に準拠して行なう。この硬度が40未満では柔らかすぎて取り扱いにくく、70を超えると硬くなりすぎて弾力性に欠けるという問題がある。

【0012】本発明の複合体は電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、リング等に使用できるが、特に燃料電池(固体高分子型燃料電池)のセパレータの用途に好適に使用できる。このようなセパレータはより小型化が要求され、また多数のセパレータを重ね合わせて使用することから精度が優れ、生産性のよいセパレータが要求されており、射出成形によりシリコ

ン樹脂層を形成する本発明の複合体はこのような要求を満足することが容易である。

#### 【 0 0 1 3 】

【実施例】以下、実施例について説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

（実施例 1）図 2 の断面概略図に示した射出成形用金型を使用し、図 1 の断面概略図に示したシリコン樹脂—金属複合体のパッキン材を得た。図 1 のパッキン材は円盤状のものであって、円環状の凹凸部 A を設けたステンレス鋼板からなる金属薄板 1 1（厚み 0. 3 mm）と、この表面にリブ部 2 1 を有するシリコン樹脂層 2 が部分的に同心円状に形成されている。

【 0 0 1 4 】パッキン材は外径が 2 0 0 mm で同心円状に部分的にリブ部を設けた円形のパッキンでシリコン樹脂層 2 の厚みは 6 0 ~ 1 0 0  $\mu$  m、リブ部 2 1 の形状は幅 5 0 0  $\mu$  m × 高さ 5 0 0  $\mu$  m のほぼ断面台形状のものをそれぞれ 2 本形成している。シリコン樹脂層 2 の硬度は 6 0 であった。

【 0 0 1 5 】上記パッキン材は図 2 の断面概略図に示した射出成形用金型を用いた射出成形装置を使用して製造したものであり、図 2 に示すように凹凸部を設けたステンレス鋼板 1 1 は雄型 4 に載置し保持され、雌型 5 のゲート 3、3 から液状シリコン樹脂が射出される。

【 0 0 1 6 】液状シリコン樹脂として信越化学（株）製 KE-1 9 5 0 - 6 0 を使用し、金型温度 1 6 0 °C、射出圧 3 0 0 K g f / c m<sup>2</sup> の条件で、ステンレス鋼板（表面プライマー処理 東芝シリコン（株）製 ME-2 1）の片面に射出成形した。脱型した後、図 1 に示した断面概略図のパッキン材を得た。得られたパッキン材ではステンレス鋼板とシリコン樹脂層との間の接着性が良好で剥離等がなく、またバリや気泡等の発生が見られずパッキン材としての性能上問題なかった。

【 0 0 1 7 】（実施例 2）次に、他の実施例として射出成形法により形成してなるシリコン樹脂—金属複合体製の燃料電池セパレータについて図 3 ~ 1 0 に基づいて説明する。図 3 に示した射出成形用金型 3 0 に金属薄板からなる金属製のセパレータ本体 3 1 をセットし、セパレータ本体 3 1 の一側面 3 2 にシリコン樹脂層（硬度 6 0）からなるシール材 3 3 a を射出成形法により形成した後、セパレータ本体 3 1 を図 4 に示した射出成形用金型 3 4 にセットし、セパレータ本体 3 1 の他側面 3 5 にシリコン樹脂層（硬度 6 0）からなるシール材 3 3 b を射出成形法により形成し、図 5 ~ 6 に示す燃料電池セパレータ 3 6 を形成した。

【 0 0 1 8 】セパレータ本体 3 1 の厚みは 0. 3 mm であり、中央部 3 7 にはプレス成形又はエッチング処理により凹凸状のガス溝パターン 3 8 が形成され、周縁部 3 9 には反応ガス通路孔 4 0、ピン孔 4 1 及び冷却媒体通路 4 2 が穿孔され、反応ガス通路孔 4 0 と中央部 3 7 とは凹凸状の反応ガス通路部 4 3 により連通されている。

セパレータ本体 3 1 の凹凸状のガス溝パターン 3 8 の頂面は電極接触部 4 4 を形成し、電極接触部 4 4 には耐蝕性かつ良導電性の表面処理が施されている。

【 0 0 1 9 】図 5 及び図 7 に示すように、セパレータ本体 3 1 の一側面 3 2 の周縁部 3 9 a には、板状の基体部 4 5 と凸条のリブ部 4 6 とが形成されたシール材 3 3 a が一体的に被着されている。図 6 及び図 7 に示すように、他側面 3 5 の周縁部 3 9 b には板状の基体部 4 7 のみからなるシール材 3 3 b が一体的に被着されている。

【 0 0 2 0 】反応ガス通路部 4 3 にはセパレータ本体 3 1 の両側面の周縁部 3 9 a、3 9 b とシール材 3 3 a、3 3 b との間に薄板耐蝕性剛体板（S U S 3 0 4、厚さ 0. 1 mm）4 8 が介設され、薄板耐蝕性剛体板 4 8 はシール材 3 3 a、3 3 b に一体的に被着され、反応ガス通路部 4 3 中での反応ガスの流通が確保されている。シール材 3 3 a、3 3 b の基体部 4 5、4 7 の厚みは好ましくは 5 0 ~ 3 5 0  $\mu$  m であり、特に好ましくは 6 0 ~ 2 0 0  $\mu$  m である。

【 0 0 2 1 】リブ部 4 6 はシール材 3 3 a の内縁に沿って一周するように形成された第 1 リブ部 4 6 a と反応ガス通路孔 4 0 の外周を一周するように形成された第 2 リブ部 4 6 b と冷却媒体通路 4 2 の外周を一周するように形成された第 3 リブ部 4 6 c とから形成され、リブ部 4 6 の断面形状は幅 5 0 0  $\mu$  m、高さ 5 0 0  $\mu$  m の断面略半円状をなしている。

【 0 0 2 2 】図 7 に示すように、燃料電池セパレータ 3 6、4 9、5 0、電極 5 1 及びスペーサ 5 2 が組み合わされて単電池ユニット 5 3 が構成される。図 8 に示すように、燃料電池セパレータ 4 9 は、リブ部 5 4 が形成された側のシール材 5 5 にセパレータ本体 5 6 の中央部 5 7 と冷却媒体通路 5 8 とを連通する冷媒連通路 5 9 が形成されている点を除いて燃料電池セパレータ 3 6 と同様に形成されている。

【 0 0 2 3 】図 9 に示すように、燃料電池セパレータ 5 0 は、リブ部 6 0 が形成されない側のシール材 6 1 にセパレータ本体 6 2 の中央部 6 3 と冷却媒体通路 6 4 とを連通する冷媒連通路 6 5 が形成されている点を除いて燃料電池セパレータ 3 6 と同様に形成されている。

【 0 0 2 4 】図 1 0 に示すように、複数の単電池ユニット 5 3 をさらに積層し、それらの両側にターミナル 6 6、電気絶縁板 6 7 及びプレッシャープレート 6 8 を配設し、プレッシャープレート 6 8 に押え荷重（図 8 中矢印で表示）を加えて電池スタック 6 9 を構成する。

【 0 0 2 5 】このように組付けられた電池スタック 6 9 は窒素ガスにてゲージ圧力 0. 2 9 4 M P a においてもリークが極めて少なく、実際の発電状況においても、ゲージ圧力各 0. 1 9 6 M P a で改質ガス及び空気のリークは認めらず、耐久性も良好であった。

#### 【 0 0 2 6 】

【発明の効果】上述したように、本発明のシリコン樹脂

5

脂-金属複合体では、シリコン樹脂層を射出成形法により形成することにより、立体的な形状の複合体を正確にかつ効率的に製造できるという利点を有しており、各種電気・電子部品等のクッション材、パッキン材、スペーサー、特に燃料電池（固体高分子型燃料電池）のセパレータとして好適に使用できる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の複合体の一例であるパッキン材を示す断面概略図である。

【図 2】図 1 のパッキン材を成形するための射出成形用金型の一例を示す断面概略図である。

【図 3】本発明の複合体を用いた燃料電池セパレータを成形するための射出成形用金型の要部断面図である。

【図 4】図 3 に示した射出成形用金型と別の射出成形用金型の要部断面図である。

【図 5】本発明の実施例の燃料電池セパレータの一面側

を示す図である。

【図 6】図 5 の燃料電池セパレータの側面側を示す図である。

【図 7】複数の燃料電池セパレータを積層して形成した単電池ユニットの要部拡大断面図である。

【図 8】上記単電池ユニットを形成する別の燃料電池セパレータを示す図である。

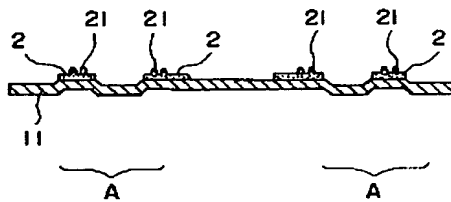
【図 9】上記単電池ユニットを形成するさらに別の燃料電池セパレータを示す図である。

【図 10】上記単電池ユニットを組み合わせ形成した電池スタックを示す図である。

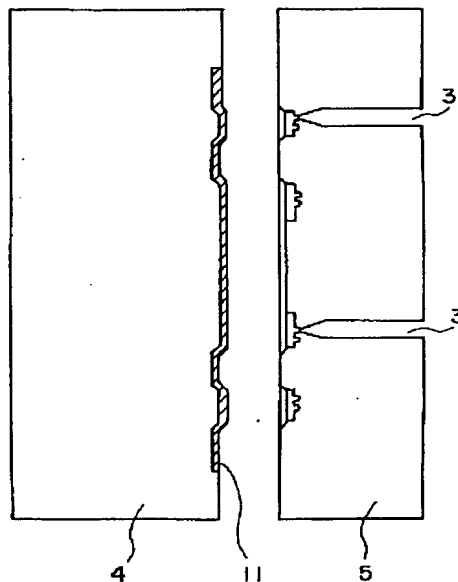
【符号の説明】

- 11 … 金属薄板
- 2 … シリコン樹脂層
- 21 … リブ部

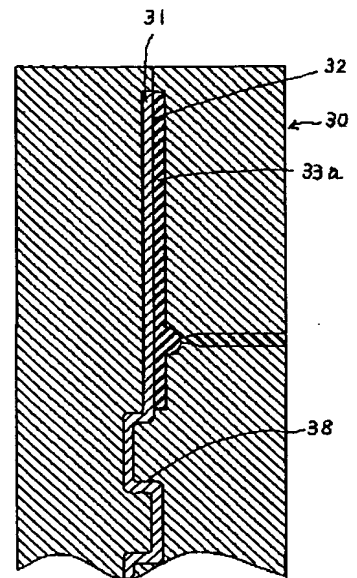
【図 1】



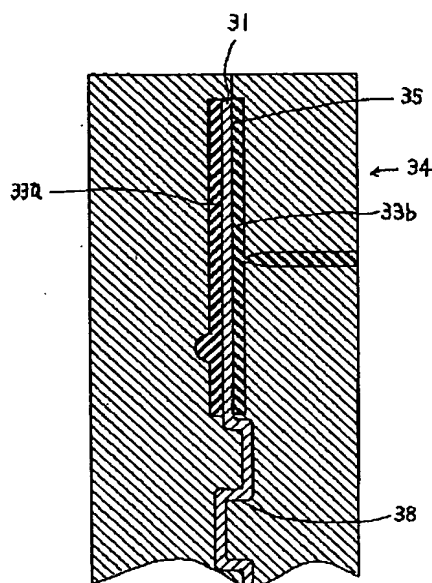
【図 2】



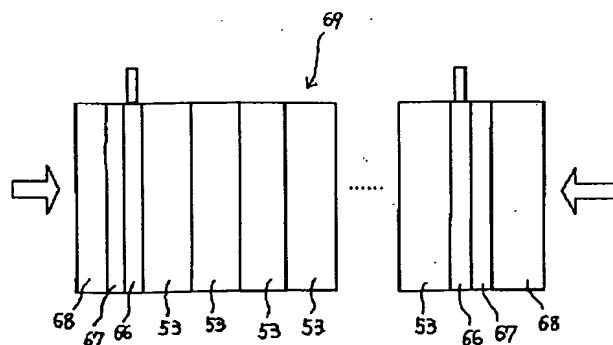
【図 3】



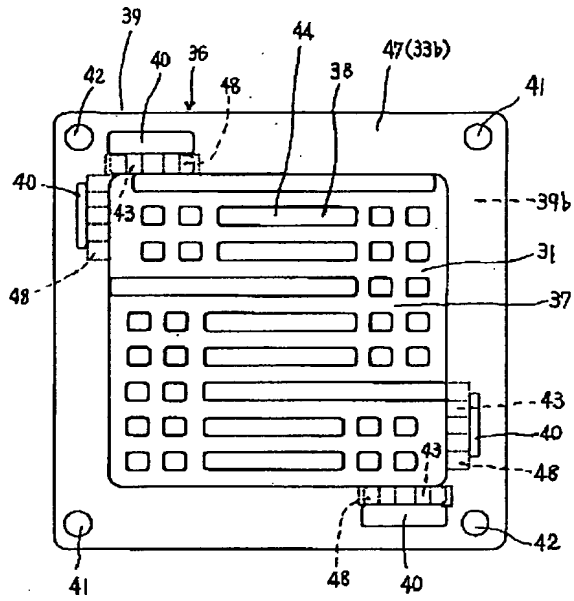
【図 4】



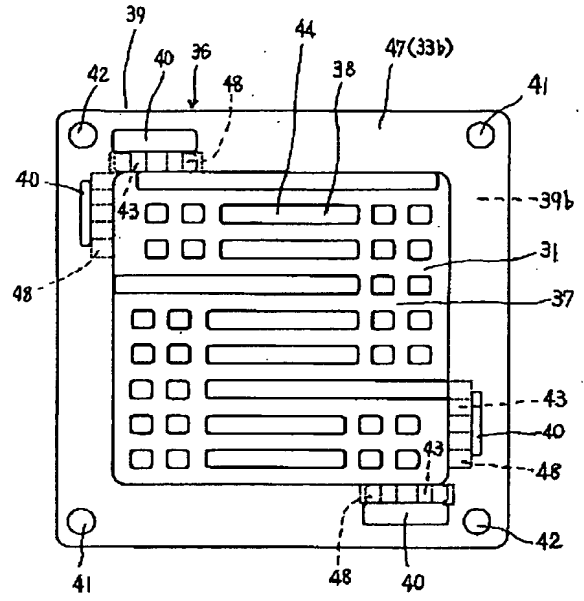
【図 10】



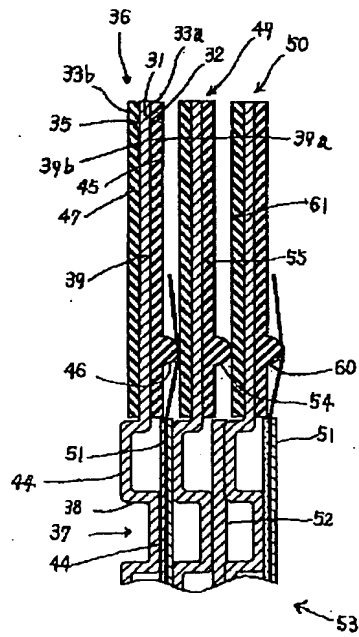
【図 5】



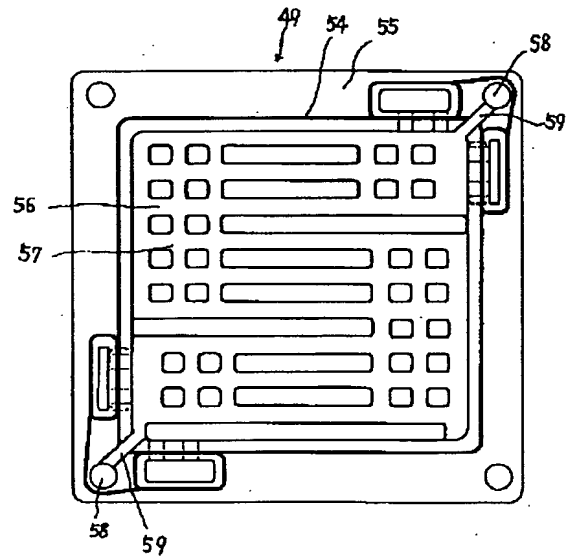
【図 6】



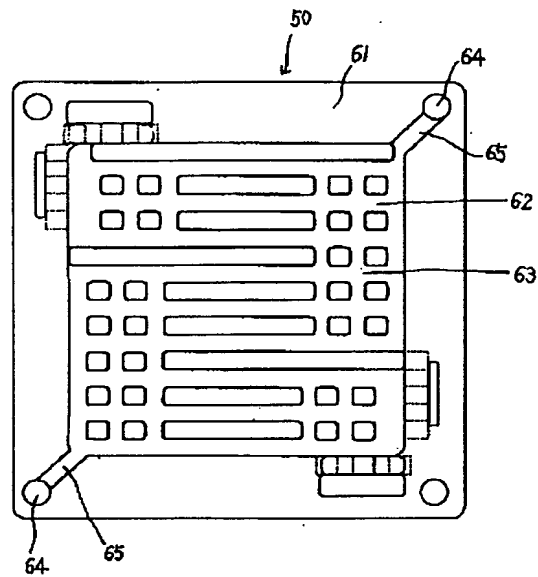
【図 7】



【図 8】



【図 9】



---

フロントページの続き

- (72)発明者 恒川 武幸  
滋賀県長浜市三ツ矢町 5 番 8 号 三菱樹脂  
株式会社長浜工場内
- (72)発明者 山口 悦郎  
神奈川県平塚市真土2480番地 三菱樹脂株  
式会社平塚工場内

## CLAIMS

[Claim 1] A composite element containing silicone resin and metal comprising: a sheet metal; and a silicone resin layer formed at least one side of the sheet metal, whose thickness is in a range from 0.05 mm to 1.0 mm, and whose hardness is in a range from 40 to 70 (JISK6301 spring type hardness test A type).

[Claim 2] A composite element containing silicone resin and metal according to claim 1, wherein the sheet metal has irregularities on the surfaces thereof.

[Claim 3] A composite element containing silicone resin and metal according to one of claims 1 and 2, wherein the composite element of silicone resin and metal is used for separators of a fuel cell.

[0013]

[Example] Hereafter, although an example is explained, this invention is not limited to this.

(Example 1) By using injection molds of which schematic cross-sectional views are shown in FIG. 2, a sealing member of composite element containing silicone resin and metal of which a schematic cross-sectional view is shown in FIG. 1 was obtained. The sealing member shown in FIG. 1 is formed in an annular disc shape, and includes a sheet metal 11 (whose thickness is 0.3 mm) which is of stainless steel, and which has annular grooves and bumps A, and annular silicone resin layers 2 which are formed on portions of the sheet metal 11 in a concentric manner, and each of which has ribs 21 formed thereon.

[0014] The sealing member is an annular-shaped sealing member whose diameter is 200 mm, and which includes concentric annular rib sections formed on some portions thereof. The thicknesses of the silicone resin layers 2 are 60 to 100  $\mu\text{m}$ . Each of the resin layers 2 is provided with two ribs 21 each of which has a substantially trapezoidal cross-section having width of 500  $\mu\text{m}$ , and height of 500  $\mu\text{m}$ . The hardness of the silicone resin layer 2 was 60.

[0015] The above-mentioned sealing member was fabricated using the injection molds whose schematic cross-sectional views are shown in FIG. 2. The stainless steel plate 11 having irregularities was placed on a male mold 4, and liquid silicone resin was

injected through gates 3 and 3 formed in a female mold 5.

[0016] As the liquid silicone resin, KE-1950-60, which was a product made by Shin-Etsu Chemical Co., Ltd. was used, and the liquid silicone resin was injected onto one surface of the stainless steel plate (ME-21 having primer treated surface made by Toshiba Silicone Ltd.) under molding conditions such that die temperature was 160°C, and injection pressure was 300 kgf/cm<sup>2</sup>. After demolding, the sealing member, of which a schematic cross-sectional view is shown in FIG. 1, was obtained. The obtained sealing member exhibited satisfactory performance as a sealing member, i.e., the adhesive property between the stainless steel plate and the silicone resin layer was good such that there were no separations, etc., and there were no burrs, bubbles, etc.

[0017] (Example 2) Next, a separator for a fuel cell, which is of a sealing member of a composite element containing silicone resin and metal formed by the injection-molding method is explained as another example with reference to FIGS. 3 to 10. The separator 36 for a fuel cell was fabricated through the steps of setting a separator body 31 of metal, which was made from a metal sheet, in an injection mold 30 shown in FIG. 3, forming a sealing member 33a of silicone resin layer (whose hardness was 60) on one side 32 of the separator body 31 using an injection molding process, setting the separator body 31 in an injection mold 34 shown in FIG. 4, and forming a sealing member 33b of silicone resin layer (whose hardness was 60) on the other side 35 of the separator body 31 using an injection molding process.